

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2004 年 9 月 2 日 (02.09.2004)

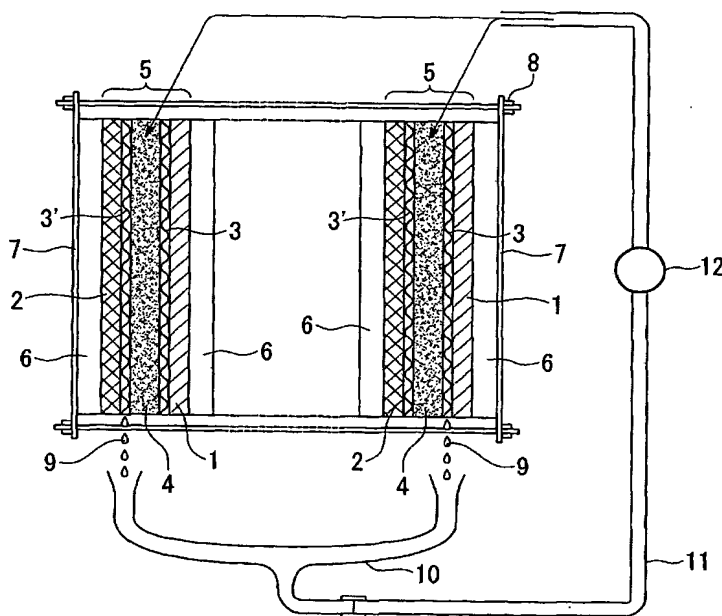
PCT

(10) 国際公開番号
WO 2004/074528 A1

- (51) 国際特許分類⁷: C22C 19/05, H01M 8/10, 8/24, 8/02
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2004/001995
- (22) 国際出願日: 2004 年 2 月 20 日 (20.02.2004)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
 特願2003-44416 2003 年 2 月 21 日 (21.02.2003) JP
 特願2003-44417 2003 年 2 月 21 日 (21.02.2003) JP
 特願2004-27444 2004 年 2 月 4 日 (04.02.2004) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 三菱マテリアル株式会社 (MITSUBISHI MATERIALS CORPORATION) [JP/JP]; 〒100-8117 東京都千代田区大手町一丁目5番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
 (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 菅原 克生 (SUGAHARA, Katsuo) [JP/JP]; 〒364-0023 埼玉県北本市下石戸下476 三菱マテリアル株式会社 非鉄材料技術研究所内 Saitama (JP).
- (74) 代理人: 志賀 正武, 外 (SHIGA, Masatake et al.); 〒104-8453 東京都中央区八重洲2丁目3番1号 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, [続葉有]

(54) Title: Ni BASE ALLOY

(54) 発明の名称: N i 基合金



(57) Abstract: A Ni base alloy having a chemical composition, in mass %: Cr: 29 % or more and less than 42 %, Ta: more than 1 % and 3 % or less, Mg: 0.001 to 0.05 %, N: 0.001 to 0.04 %, Mn: 0.05 to 0.5 %, and the balance: Ni and inevitable impurities, with the proviso that the content of C as an inevitable impurity is 0.05 % or less; and a Ni base alloy having a chemical composition, in mass %: Cr: more than 43 % and 50 % or less, Mo: 0.1 to 2 %, Mg: 0.001 to 0.05 %, N: 0.001 to 0.04 %, Mn: 0.05 to 0.5 %, and the balance: Ni and inevitable impurities, with the proviso that the content of C as an inevitable impurity is 0.05 % or less.

(57) 要約: 質量%で、Cr:29~42%未満、Ta:1より大きく3%以下、Mg:0.001~0.05%、N:0.001~0.04%、Mn:0.05~0.5%を含有し、残部がNiおよび不可避不純物からなる、Ni基合金。質量%で、Cr:43%より大きく50%以下、Mo:0.1~2%、Mg:0.001

[続葉有]



BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG,

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

明細書

Ni 基合金

5

技術分野

この発明は、Ni 基合金に関するものである。なお、本出願は、特許出願 2003 年第 44416 号、特許出願 2003 年第 44417 号、特許出願 2004 年第 27444 号を基礎としており、その内容をここに組み込むものとする。

10

背景技術

近年、常温から 80℃の低温で作動する固体高分子形燃料電池は、コンパクトにできるところから車載用や携帯用への用途が期待され、その開発が急速に進められている。その固体高分子形燃料電池の構造は図 1 の概略説明図に示されている。図 1 において 1 は水素極、2 は酸素極、3、3' は白金触媒、4 は固体電解質膜、5 は単位セルである。単位セル 5 は固体電解質膜 4 の両面に白金触媒 3、3' を設け、白金触媒 3 の外側に水素極 1 を設け、白金触媒 3' の外側に酸素極 2 を設けることにより形成される。この単位セル 5 をセパレータ 6 により隔てて積層させ、固体高分子形燃料電池を形成している。複数の単位セル 5 をセパレータ 6 により隔てて積層させ固体高分子形燃料電池を形成するには、次のことが行われる。すなわち、少なくとも 2 枚の支持板 7 とボルトおよびナットなどの締め付け具 8 によって複数の単位セル 5 をセパレータ 6 により隔てて積層させて固定する。

25 このような構造を有する固体高分子形燃料電池の単位セル 5 における発電原理は以下のとおりである。すなわち、天然ガスやメタノールなどから得られる水素を水素極 1 に供給すると、供給された水素は水素極 1 側の白金触媒 3 によって水素イオンと電子に分解される。電子は電気として外部に取り出され、外部負荷回路（図示せず）を流れて酸素極 2 に達する。一方、水素イオンは水素イオンのみ

を通過する固体高分子状のイオン交換膜からなる固体電解質膜 4 を通って酸素極 2 側に移動する。そして、酸素極 2 側では白金触媒 3 によって水素イオンと電子と酸素が反応して水を作り出す。固体電解質膜 4 は水素ガスを水素イオンとして透過させる役割があり、そのためには湿潤であることが必要である。酸素極 2 側は水素イオンと電子と酸素が反応して水が生成される。このために固体電解質膜 4 の湿潤保持についての問題は生じない。しかし、固体電解質膜 4 で隔てられた水素極 1 側はそのままでは供給される水がないために乾いてしまう。そこで水素極 1 側の固体電解質膜の湿潤を確保するために、酸素極 2 側から排出される水 9 をマニホールド 10 に受け、そしてパイプ 11 を通って、ポンプ 12 により水素極 1 側の固体電解質膜 4 に供給されるようになっている。

前述のように、酸素極 2 側から排出される水 9 をマニホールド 10 で受け、パイプ 11 を通ってポンプ 12 により水素極 1 側の固体電解質膜 4 に供給することにより水素極 1 側の固体電解質膜の湿潤を確保している。しかし、通常、固体高分子形燃料電池に使用される固体電解質膜 4 は、スルホン化処理が施されていることから、これらに起因して酸素極 2 側から排出される水 9 は硫酸酸性となり、弱い腐食性を持つことから、水 9 を受けるマニホールド 10 およびパイプ 11 は耐食性が必要とされる。

また、固体高分子形燃料電池に使用される固体電解質膜は、スルホン化処理の代わりにフッ化処理が施されている場合がある。これに起因して酸素極 2 側から排出される水 9 はフッ酸酸性となり、水 9 を受けるマニホールド 10 およびパイプ 11 は同様に耐食性が必要とされる。

さらに、水素極 1 および酸素極 2 には貫通孔（図示せず）が設けられている。酸素極 2 側から排出される硫酸酸性またはフッ酸酸性の水 9 は貫通孔（図示せず）を通過してセパレータ 6 と接触する。また酸素極 2 側から排出され循環されて水素極 1 側に至った硫酸酸性またはフッ酸酸性の水 9 も貫通孔（図示せず）を通過してセパレータ 6 と接触する。したがって、セパレータ 6 においても耐食性が求められている。

このような耐食性を必要とするマニホールド 10、パイプ 11、セパレータ 6 などの材料として一般に SUS 316 L などのステンレス鋼が使用されている。

さらに酸素極 2 側で生成された硫酸酸性またはフッ酸酸性の水は支持板 7、ボルトおよびナットなどの締め付け具 8 などに飛散するなどして付着し、これらを腐食させる。このことから、支持板 7、ボルトおよびナットなどの締め付け具 8 にも一般に SUS 316L などのステンレス鋼が使用されている。すなわち、支持板 7、締め付け具 8、マニホールド 10、パイプ 11、セパレータ等の固体高分子形燃料電池を組立てるための、単位セル 5 を除く構造部材（以下、固体高分子形燃料電池用組立て構造部材という）は、SUS 316L などのステンレス鋼が使用されることが知られている（開 2001-6714 号公報、特開 2000-299121 号公報、特開 2000-331696 号公報などを参照）。

一般に、腐食試験前後での腐食速度（mm/year）が 0.1 mm/year 未満であれば、固体高分子形燃料電池用組立て構造部材としてエクセレントと判定され、ステンレス鋼の耐食性もエクセレントと判定されている。しかし、ステンレス鋼は金属イオンの溶出量が多く、この溶出した金属イオンは固体電解質膜を劣化させる。このことから固体高分子形燃料電池の寿命を著しく低減させる原因になる。そのために、金属イオンの溶出量が極めて少ない金属材料の開発が求められていた。

発明の開示

本発明は、固体高分子形燃料電池を形成する環境でイオン溶出量が著しく小さい Ni 基合金に関するものである。また、この発明は、固体高分子形燃料電池の単位セルを積層させ組立てるために使用する固体高分子形燃料電池環境でイオン溶出量が著しく小さい Ni 基合金からなる固体高分子形燃料電池用組立て構造部材に関するものである。

本発明者らは、固体高分子形燃料電池環境で金属イオンの溶出量が極めて少ない金属材料を得るべく鋭意研究を行った。

その結果、質量%（以下、%は質量%を示す）で Cr : 29~42%未満含有する Ni 基合金に Ta : 1%より大きく 3%以下と、Mg : 0.001~0.05%と、N : 0.001~0.04%と、Mn : 0.05~0.5%を含有せし

め、さらに、必要に応じてMo : 0.1~2%、Fe : 0.05~1.0%およびSi : 0.01~0.1%を1種または2種以上を含有し、残りがNiおよび不可避不純物からなり、不可避不純物としてのCを0.05%以下に調整した組成を有するNi基合金は、固体高分子形燃料電池環境における腐食試験前後での腐食速度 (mm/year) が0.1mm/year未満でありかつ固体高分子形燃料電池環境でイオン溶出量が著しく小さいことから、このNi基合金は固体高分子形燃料電池用組立て構造部材としてステンレス鋼などよりも一層優れた効果を有する、という知見を得たのである。

また、質量% (以下、%は質量%を示す) でCr : 43%より大きく50%以下含有するNi基合金にMo : 0.1~2%と、Mg : 0.001~0.05%と、N : 0.001~0.04%と、Mn : 0.05~0.5%を含有せしめ、さらに、必要に応じてFe : 0.05~1.0%およびSi : 0.01~0.1%を1種または2種を含有し、残りがNiおよび不可避不純物からなり、不可避不純物としてのCを0.05%以下に調整した組成を有するNi基合金は、固体高分子形燃料電池環境における腐食試験前後での腐食速度 (mm/year) が0.1mm/year未満でありかつ固体高分子形燃料電池環境でイオン溶出量が著しく小さいことから、このNi基合金は固体高分子形燃料電池用組立て構造部材としてステンレス鋼などよりも一層優れた効果を有する、という知見を得たのである。

20 本発明の第一~六の態様は、かかる知見に基づいてなされたものである。

本発明の第一の態様は、

(1) 質量%で、Cr : 29~42%未満、Ta : 1より大きく3%以下、Mg : 0.001~0.05%、N : 0.001~0.04%、Mn : 0.05~0.5%を含有し、残部がNiおよび不可避不純物からなり、不可避不純物として含まれるC量が0.05%以下である組成を有する、Ni基合金である。

本発明の第二の態様は、

(2) 質量%で、Cr : 29~42%未満、Ta : 1より大きく3%以下、Mg : 0.001~0.05%、N : 0.001~0.04%、Mn : 0.05~0.5%を含有し、さらにMo : 0.1~2%を含有し、残部がNiおよび不可

避不純物からなり、不可避不純物として含まれるC量が0.05%以下である組成を有する、Ni基合金である。

本発明の第三の態様は、

(3) 質量%で、Cr : 29~42%未満、Ta : 1より大きく3%以下、Mg : 0.001~0.05%、N : 0.001~0.04%、Mn : 0.05~0.5%を含有し、さらにFe : 0.05~1.0%およびSi : 0.01~0.1%の1種または2種を含有し、残部がNiおよび不可避不純物からなり、不可避不純物として含まれるC量が0.05%以下である組成を有する、Ni基合金である。

10 本発明の第四の態様は、

(4) 質量%で、Cr : 29~42%未満、Ta : 1%より大きく3%以下、Mg : 0.001~0.05%、N : 0.001~0.04%、Mn : 0.05~0.5%を含有し、さらにMo : 0.1~2%を含有し、さらにFe : 0.05~1.0%およびSi : 0.01~0.1%の1種または2種を含有し、残部がNiおよび不可避不純物からなり、不可避不純物として含まれるC量が0.05%以下である組成を有する、Ni基合金である。

(5) 前記一、二、三または四の態様のNi基合金は、Ni基合金からなる固体高分子形燃料電池用組立て構造部材に含まれていても、あるいは全てを構成していても良い。

20 (6) 前記一、二、三または四の態様のNi基合金は、固体高分子形燃料電池用マニホールド部材に含まれていても、あるいは全てを構成していても良い。

(7) 一、二、三または四の態様のNi基合金は、固体高分子形燃料電池用配管部材に含まれていても、あるいは全てを構成していても良い。

25 (8) 一、二、三または四の態様のNi基合金は、固体高分子形燃料電池用締付け具部材に含まれていても、あるいは全てを構成していても良い。

(9) 一、二、三または四の態様のNi基合金は、固体高分子形燃料電池用支持板部材に含まれていても、あるいは全てを構成していても良い。

(10) 前記(1)、(2)、(3)または(4)のNi基合金は、固体高分子形燃料電池用セパレータ部材に含まれていても、あるいは全てを構成していても良い。

本発明の第五の態様は、

- 5 (11) 質量%で、Cr : 43%より大きく50%以下、Mo : 0.1~2%、Mg : 0.001~0.05%、N : 0.001~0.04%、Mn : 0.05~0.5%を含有し、残部がNiおよび不可避不純物からなり、不可避不純物として含まれるC量が0.05%以下である組成を有する、Ni基合金である。

上記第六の態様は、

- 10 (12) 質量%で、Cr : 43%より大きく50%以下、Mo : 0.1~2%、Mg : 0.001~0.05%、N : 0.001~0.04%、Mn : 0.05~0.5%を含有し、さらに、Fe : 0.05~1.0%およびSi : 0.01~0.1%の内の1種または2種を含有し、残部がNiおよび不可避不純物からなり、不可避不純物として含まれるC量が0.05%以下である組成を有する、
15 Ni基合金である。

第五及び六の態様のNi基合金は、固体高分子形燃料電池環境でイオン溶出量が著しく小さいところから、支持板7、締め付け具8、マニホールド10、パイプ11、セパレータ6等の固体高分子形燃料電池を組立てるための固体高分子形燃料電池用組立て構造部材として特に有効である。

- 20 したがって、

(13) 前記第五及び六の態様のNi基合金は、固体高分子形燃料電池用組立て構造部材に含まれていても、あるいは全てを構成していても良い。

(14) 前記第五及び六の態様のNi基合金は、固体高分子形燃料電池用マニホールド部材に含まれていても、あるいは全てを構成していても良い。

- 25 (15) 前記第五及び六の態様のNi基合金は、固体高分子形燃料電池用配管部材に含まれていても、あるいは全てを構成していても良い。

(16) 前記第五及び六の態様のNi基合金は、固体高分子形燃料電池用締め付け具部材に含まれていても、あるいは全てを構成していても良い。

(17) 前記第五及び六の態様のNi基合金は、固体高分子形燃料電池用支持板部材に含まれていても、あるいは全てを構成していても良い。

(18) 前記第五及び六の態様のNi基合金は、固体高分子形燃料電池用セパレータ部材に含まれていても、あるいは全てを構成していても良い。

5

図面の簡単な説明

図1は、固体高分子形燃料電池の構造を説明するための概略説明図である。

10

発明を実施するための最良の形態

次に、第一～四の態様の、固体高分子形燃料電池環境でイオン溶出量が著しく小さいNi基合金の合金組成における各元素の限定理由について詳述する。

Cr、Ta：

15 微量なフッ酸が混入する固体高分子形燃料電池環境では、CrとTaが同時に含有することにより耐食性が著しく向上する。その場合、Crは29%以上含有することが必要である。しかし、42%以上含有するとTaとの組合せにおいて単一相化が困難になり、金属イオンの溶出量が増大するので好ましくないところからCr含有量を29～42%未満に定めた。一層好ましくは、35～41%で
20 ある。

同様にTaは1%を越えて含有することが必要である。しかし3%を超えて含有するとCrとの組合せにおいて相安定性が劣化し、金属イオンの溶出量が増大するので好ましくない。したがって、Taの含有量を1%より大きく3%以下（一層好ましくは1.1～2.5%未満）に定めた。

25 N、MnおよびMg：

N、MnおよびMgを共存させることにより、相安定性を向上させることができる。すなわち、N、MnおよびMgは母相であるNi-fcc相を安定化させ、Crの固溶化を促進し、第2相を析出しにくくする効果がある。しかし、Nの含有量が0.001%未満では相安定化の効果はなく、一方、0.04%を超え

て含有すると窒化物を形成し固体高分子形燃料電池環境における金属イオンの溶出量が増大する。このため、Nの含有量を0.001~0.04%（一層好ましくは、0.005~0.03%）とした。

同様に、Mnの含有量が0.05%未満では相安定化の効果はなく、一方、0.5%を超えて含有すると固体高分子形燃料電池環境における金属イオンの溶出量が増大する。このため、Mnの含有量を0.05~0.5%（一層好ましくは、0.1%~0.4%）とした。

また、同様に、Mgの含有量が0.001%未満では相安定化の効果はなく、一方、0.05%を超えて含有すると固体高分子形燃料電池環境における金属イオンの溶出量が増大する。このため、Mgの含有量を0.001~0.05%（一層好ましくは、0.002%~0.04%）とした。

Mo :

Moは、特に微量な硫酸が含まれる固体高分子形燃料電池環境で硫酸濃度が上がった場合の金属イオンの溶出量が増大するのを抑制する効果がある。よって必要に応じて添加するが、その場合、0.1%以上含有することで効果を示す。しかし、2%を超えて含有すると相安定性が劣化し、Cr-bcc相の固溶化を困難にしてしまう。このため、母相であるNi-fcc相とCr-bcc相との間でマイクロ電池を形成し、結果的に金属イオンの溶出量を増大させるので好ましくない。従って、この発明のNi基合金に含まれるMoは0.1~2%に定めた。一層好ましい範囲は0.1より大きく0.5%未満である。

FeおよびSi :

FeおよびSiは強度を向上させる効果があるので必要に応じて添加する。しかし、Feは0.05%以上含有することで効果を示すものの、1%を超えて含有すると固体高分子形燃料電池環境における金属イオンの溶出量が増大するため、Feの含有量を0.05%~1%（一層好ましくは、0.1~0.5%未満）とした。

同様にSiは0.01%以上含有することで効果を示すものの、0.1%を超

えて含有すると固体高分子形燃料電池環境における金属イオンの溶出量が増大する。このため、S i の含有量を0.01%~0.1%（一層好ましくは、0.02~0.05%）とした。

C :

- 5 Cは不可避不純物として含まれるが、Cが大量に含まれると結晶粒界近傍でC r と炭化物を形成し、金属イオンの溶出量を増大させる。そのため、Cの含有量は少ないほど好ましく、不可避不純物に含まれるCの含有量の上限を0.05%と定めた。Cの含有量は0が好ましい。実質的には0.001以上0.05%以下であってもよい。

- 10 次に、第五、六の態様の固体高分子形燃料電池環境でイオン溶出量が著しく小さいN i 基合金の合金組成における各元素の限定理由について詳述する。

C r :

微量な硫酸が混入する固体高分子形燃料電池環境では、C r が金属イオン溶出の抑制に有効である。その場合、43%を越えて含有することが必要であるが、
15 50%を超えて含有すると加工が困難となる。従って、この発明のN i 基合金に含まれるC r は43%より大きく50%以下に定めた。一層好ましくは、43.1~47%である。

M o :

- 20 M o は、特に微量な硫酸が含まれる固体高分子形燃料電池環境で硫酸濃度が上がった場合の溶出量の増大を抑制する効果がある。その場合、0.1%以上含有することで効果を示すが、2%を超えて含有すると相安定性を劣化させ、C r -b c c 相の固溶化を困難にしてしまう。このため、母相であるN i -f c c 相とC r -b c c 相との間でマイクロ電池を形成する。そして、結果的に金属イオンの溶出量を増大させてしまうので、M o 含有量は0.1~2%に定めた。一層好ま
25 しくは0.1%より大きく0.5%未満である。

N、M n およびM g :

N、M n およびM g を共存させることにより、相安定性を向上させることができる。すなわち、N、M n およびM g は母相であるN i -f c c 相を安定化させ、C r の固溶化を促進し、第2相を析出しにくくする効果がある。しかし、Nの

含有量が0.001%未満では相安定化の効果はなく、一方、0.04%を超えて含有すると窒化物を形成し固体高分子形燃料電池環境における金属イオンの溶出量が増大する。このため、Nの含有量を0.001~0.04%（一層好ましくは、0.005~0.03%）とした。

- 5 同様に、Mnの含有量が0.05%未満では相安定化の効果はなく、一方、0.5%を超えて含有すると固体高分子形燃料電池環境における金属イオンの溶出量が増大する。このため、Mnの含有量を0.05~0.5%（一層好ましくは、0.1%~0.4%）とした。

- また、同様に、Mgの含有量が0.001%未満では相安定化の効果はなく、
10 一方、0.05%を超えて含有すると固体高分子形燃料電池環境における金属イオンの溶出量が増大する。このため、Mgの含有量を0.001~0.05%（一層好ましくは、0.002%~0.04%）とした。

FeおよびSi :

- FeおよびSiは強度を向上させる効果があるので必要に応じて添加するが、
15 Feは0.05%以上含有することで効果を示すものの、1%を超えて含有すると固体高分子形燃料電池環境における金属イオンの溶出量が増大する。このため、Feの含有量を0.05%~1%（一層好ましくは、0.1~0.5%未満）とした。

- 同様にSiは0.01%以上含有することで効果を示すものの、0.1%を超えて含有すると固体高分子形燃料電池環境における金属イオンの溶出量が増大する。このため、Siの含有量を0.01%~0.1%（一層好ましくは、0.02~0.05%）とした。

C :

- Cは不可避不純物として含まれるが、Cは結晶粒界近傍でCrと炭化物を形成
25 し、金属イオンの溶出量が増大する。このため、Cの含有量は少ないほど好ましく、不可避不純物に含まれるCの含有量の上限を0.05%と定めた。Cの含有量は0が好ましい。実質的には0.001%以上0.05%以下であってもよい。

実施例

<実験1、（第一~四の態様）>

いずれもC含有量の少ない原料を用意し、これらを通常の高周波溶解炉を用いて溶解し鑄造して厚さ：12mmを有するNi基合金インゴットを作製した。これらインゴットに1230℃で10時間保持の均質化熱処理を施した。そして1000～1230℃の範囲内に保持しながら、1回の熱間圧延で1mmの厚さを減少させつつ、最終的に5mm厚とした。さらにこれを1200℃で30分間保持し、水焼入れすることにより固溶化処理を施した。こののち、表面をバフ研磨することにより、表1～2に示される成分組成を有する実施例のNi基合金板1～20、比較例のNi基合金板1～10を作製した。

同様にC含有量の少ない原料を通常の高周波溶解炉を用いて溶解し鑄造して厚さ：5mmを有するNi基合金精密鑄造インゴットを作製した。このインゴットに1230℃で10時間保持の均質化熱処理を施したのち水焼入れした。これにより表2に示される成分組成を有する実施例Ni基合金板21を作製した。

さらに、厚さ：5mmを有するSUS304ステンレス鋼板からなる従来技術例の合金板1およびSUS316Lステンレス鋼板からなる従来技術例の合金板2を用意した。

これら実施例のNi基合金板1～21、比較例のNi基合金板1～10および従来技術例の合金板1～2をそれぞれ縦：10mm、横：50mmの寸法に切断して試験片を作製した。これら試験片は、耐水エメリー紙#400仕上げによる表面研磨したのち、アセトン中超音波振動状態に5分間保持し脱脂した。

さらに、固体高分子形燃料電池環境で発生する硫酸酸性の水に模擬した試験液として1000ppmH₂SO₄溶液および500ppmH₂SO₄溶液を調液することにより作製した。さらに固体高分子形燃料電池環境で発生するフッ酸酸性の水に模擬した試験液として500ppmHF溶液および50ppmHF溶液を調液することにより作製した。さらにポリプロピレン製試験容器を用意した。

前記実施例のNi基合金板1～21、比較例のNi基合金板1～10および従来技術例の合金板1～2からなる試験片および前記作製した試験液：200mlをポリプロピレン製試験容器にそれぞれ入れた。これらを、グローブボックス中で減圧脱気し、水素雰囲気中で上蓋を閉めることにより密封した。これらの密封したポリプロピレン製試験容器を80℃に設定した恒温槽中に入れ、500時間

保持した。その後ポリプロピレン製試験容器を取り出して冷却した。その後、 H_2SO_4 溶液およびHF 溶液中に溶出した元素の定量分析（ICP 発光分析による）をし、試験片から溶出した金属イオンの総量を測定した。この溶出した金属イオンの総量を試験片の表面積で割ることにより単位面積当りの溶出量を算出し、
5 その結果を表3～4に示した。

表 1

Ni基 合金板		成分組成 (質量%)									Niおよび不可 避不純物
		Cr	Ta	Mg	N	Mn	Mo	Fe	Si	C#	
実 施 例	1	30.7	2.01	0.016	0.012	0.18	—	0.12	0.021	0.02	残部
	2	29.3	2.41	0.014	0.008	0.24	—	—	—	0.02	残部
	3	41.6	1.01	0.019	0.011	0.14	—	—	—	0.01	残部
	4	37.6	1.11	0.011	0.021	0.29	—	—	—	0.02	残部
	5	33.4	2.96	0.012	0.013	0.14	—	—	—	0.02	残部
	6	37.6	1.48	0.001	0.014	0.19	—	—	—	0.02	残部
	7	34.2	2.36	0.049	0.007	0.16	—	—	—	0.02	残部
	8	34.7	2.34	0.016	0.002	0.17	—	—	—	0.01	残部
	9	36.4	1.87	0.023	0.039	0.11	—	—	—	0.02	残部
	10	35.2	1.96	0.026	0.025	0.05	—	—	—	0.02	残部
	11	35.3	2.38	0.021	0.018	0.49	—	—	—	0.02	残部
	12	33.6	1.77	0.018	0.029	0.24	0.11	—	—	0.02	残部
	13	34.8	1.98	0.015	0.020	0.16	1.98	—	—	0.02	残部
	14	34.1	1.76	0.033	0.025	0.11	—	0.5	—	0.02	残部
	15	33.7	1.87	0.031	0.030	0.16	—	0.99	—	0.02	残部
	16	34.8	2.34	0.026	0.017	0.38	—	—	0.01	0.02	残部
	17	34.8	2.17	0.028	0.021	0.18	—	—	0.09	0.03	残部

実施例

C #は、不可避不純物として含まれるC量を示す。

表 2

Ni基 合金板		成分組成(質量%)										Niおよび不可 避不純物
		Cr	Ta	Mg	N	Mn	Mo	Fe	Si	C#		
実 施 例	18	32.5	2.27	0.030	0.006	0.26	0.21	0.14	—	0.02	残部	
	19	35.1	1.75	0.032	0.028	0.23	—	0.33	0.06	0.01	残部	
	20	34.1	1.69	0.021	0.013	0.11	0.22	—	0.04	0.02	残部	
	21	34.7	1.76	0.023	0.027	0.39	0.31	0.24	0.03	0.01	残部	
	1	28.5*	1.56	0.018	0.032	0.24	—	—	—	0.02	残部	
比 較 例	2	43.5*	1.86	0.015	0.035	0.21	—	—	—	0.02	残部	
	3	32.5	0.9*	0.014	0.034	0.13	—	—	—	0.02	残部	
	4	35.0	3.30*	0.017	0.022	0.27	—	—	—	0.01	残部	
	5	36.2	1.83	—*	0.012	0.38	—	—	—	0.02	残部	
	6	35.4	1.62	0.055*	0.015	0.22	—	—	—	0.02	残部	
	7	35.7	1.45	0.022	—*	0.09	—	—	—	0.02	残部	
	8	34.8	1.67	0.024	0.045 *	0.37	—	—	—	0.01	残部	
	9	36.1	1.45	0.016	0.019	0.04*	—	—	—	0.01	残部	
	10	34.2	1.57	0.017	0.028	0.55*	—	—	—	0.02	残部	
	1	SUS304										
2	SUS316L											
従 業 技 術 例												

*印は、本発明の組成範囲から外れていることを示す。
C #は、不可避不純物として含まれるC量を示す。

表 3

Ni基 合金板		1000ppmH ₂ SO ₄ 溶液に よる金属イオン溶 出量(ppm/cm ²)	500ppmH ₂ SO ₄ 溶液に よる金属イオン溶 出量(ppm/cm ²)	500ppmHF溶液による 金属イオン溶出量 (ppm/cm ²)	50ppmHF溶液による 金属イオン溶出量 (ppm/cm ²)
実 施 例	1	1.01	0.19	0.42	0.18
	2	1.18	0.19	0.41	0.21
	3	0.30	0.08	0.24	0.05
	4	0.42	0.11	0.31	0.07
	5	0.86	0.10	0.24	0.15
	6	0.49	0.12	0.28	0.09
	7	0.77	0.12	0.27	0.13
	8	0.74	0.12	0.26	0.13
	9	0.60	0.12	0.27	0.10
	10	0.67	0.13	0.28	0.12
	11	0.72	0.11	0.25	0.12
	12	0.74	0.15	0.34	0.13
	13	0.69	0.13	0.29	0.12
	14	0.70	0.15	0.33	0.12
	15	0.74	0.15	0.33	0.13
	16	0.74	0.12	0.26	0.13
	17	0.72	0.13	0.27	0.12
	18	0.87	0.15	0.32	0.15
	19	0.65	0.14	0.31	0.11
	20	0.69	0.15	0.34	0.12
	21	0.67	0.14	0.31	0.12

表 4

Ni基 合金板		1000ppmH ₂ SO ₄ 溶液に よる金属イオン溶 出量 (ppm/cm ²)	500ppmH ₂ SO ₄ 溶液に よる金属イオン溶 出量 (ppm/cm ²)	500ppmHF溶液によ る 金属イオン溶出量 (ppm/cm ²)	50ppmHF溶液による 金属イオン溶出量 (ppm/cm ²)
比較 例	1	3.65	1.98	3.88	2.12
	2	2.01	0.96	2.45	1.02
	3	2.63	1.56	1.36	0.99
	4	1.98	1.05	1.88	0.87
	5	試料作成中に割れ発生			
	6	2.12	0.98	2.19	0.87
	7	辞軒作製中に割れ発生			
	8	3.36	1.12	2.45	1.14
	9	試料作製中に割れ発生			
	10	2.31	1.12	3.20	1.26
従来 技術 例	1	56.2	19.8	72.1	18.8
	2	33.3	10.2	36.8	9.4

表 1～4 に示された結果から、本発明の第一～四の態様の、実施例 1～21 の Ni 基合金板は、従来技術例 1, 2 の合金板 1 および 2 に比べて試験片の単位面積当たりの金属イオンの溶出量が格段に少ないことが分かる。しかし、この発明
5 から外れた比較例 1～10 の Ni 基合金板の試験片は金属イオンの溶出量がやや多かったり、板に加工する途中で割れが発生したりするものもあった。

〈実験 2、(第五及び六の態様)〉

いずれも C 含有量の少ない原料を用意し、これらを通常の高周波溶解炉を用いて溶解し鑄造して表 5～7 に示される成分組成を有する厚さ：12 mm のインゴ
10 ットを作製した。このインゴットを 1230℃ で 10 時間均質化熱処理を施し、1000～1230℃ の範囲内に保持しながら、1 回の熱間圧延で 1 mm の厚さを減少させつつ、最終的に 5 mm 厚とした。これらをさらに 1200℃ で 30 分間保持し水焼入れすることにより固溶化処理を施した。こののち表面をバフ研磨
15 することにより、表 5～7 に示される成分組成を有する実施例の Ni 基合金板 22～41、比較例の Ni 基合金板 11～20 を作製した。

同様にして C 含有量の少ない原料を通常の高周波溶解炉を用いて溶解し鑄造して表 6 に示される成分組成を有する厚さ：5 mm の精密鑄造インゴットを作製した。このインゴットに 1230℃ で 10 時間保持の均質化熱処理を施したのち水焼
20 入れすることにより実施例の Ni 基合金板 42 を作製した。

さらに、厚さ：5 mm を有する SUS 304 ステンレス鋼板からなる従来合金板 3 および SUS 316 L ステンレス鋼板からなる従来技術例の合金板 4 を用意した。

これら実施例の Ni 基合金板 22～41、比較例の Ni 基合金板 11～20 お
25 よび従来技術例の合金板 3～4 をそれぞれ縦：10 mm、横：50 mm の寸法に切断して試験片を作製した。これら試験片を耐水エメリー紙 #400 仕上げにより表面研磨したのち、アセトン中超音波振動状態に 5 分間保持し脱脂した。

さらに、固体高分子形燃料電池環境で発生する硫酸酸性の水に模擬した試験液として 1000 ppm H_2SO_4 溶液および 500 ppm H_2SO_4 溶液を調液する

ことにより作製した。さらに固体高分子形燃料電池環境で発生するフッ酸酸性の水に模擬した試験液として500ppmHF溶液および50ppmHF溶液を調液することにより作製した。さらにポリプロピレン製試験容器を用意した。

- 5 前記実施例のNi基合金板22~41、比較例のNi基合金板11~20および従来技術例の合金板3~4からなる試験片および前記作製した試験液：200mlをポリプロピレン製試験容器にそれぞれ入れた。これらを、グローブボックス中で減圧脱気し、水素雰囲気中で上蓋を閉めることにより密封した。これらお密封したポリプロピレン製試験容器を80℃に設定した恒温槽中に入れ、500時間保持した。この後ポリプロピレン製試験容器を取り出して冷却した。その後、
- 10 H_2SO_4 溶液およびHF溶液中に溶出した元素の定量分析（ICP発光分析による）をした。試験片から溶出した金属イオンの総量を測定し、この溶出した金属イオンの総量を試験片の表面積で割ることにより単位面積当りの溶出量を算出し、その結果を表5~7に示した。

表 5

Ni基 合金板	成分組成(質量%)									1000ppmH ₂ SO ₄ 溶液による 金属イオン 溶出量 (ppm/cm ²)	500ppmH ₂ SO ₄ 溶液による 金属イオン 溶出量 (ppm/cm ²)	500ppmHF 溶液に よる 金属イオン 溶出量 (ppm/cm ²)	50ppmHF 溶液 による 金属イオン 溶出量 (ppm/cm ²)	
	Cr	Mo	Mg	N	Mn	Fe	Si	C#	Niおよび 不 可 避 不 純 物					
実 施 例	22	44.0	0.90	0.011	0.017	0.06	0.10	0.04	0.02	残部	0.25	0.09	0.90	0.32
	23	43.2	0.28	0.039	0.006	0.18	—	—	0.02	残部	0.31	0.11	1.12	0.40
	24	49.8	0.41	0.030	0.009	0.10	—	—	0.03	残部	0.10	0.07	0.37	0.13
	25	45.1	0.11	0.022	0.017	0.22	—	—	0.02	残部	0.20	0.06	0.71	0.25
	26	43.1	1.99	0.026	0.010	0.08	—	—	0.02	残部	0.34	0.12	1.17	0.42
	27	45.1	0.41	0.034	0.011	0.07	—	—	0.01	残部	0.20	0.06	0.72	0.25
	28	43.5	0.32	0.038	0.002	0.11	—	—	0.02	残部	0.29	0.10	1.05	0.37
	29	44.1	0.32	0.037	0.038	0.10	—	—	0.02	残部	0.25	0.09	0.90	0.31
	30	46.0	0.42	0.002	0.018	0.05	—	—	0.02	残部	0.16	0.12	0.62	0.21
	31	44.6	0.44	0.049	0.020	0.48	—	—	0.01	残部	0.23	0.09	0.81	0.28
	32	45.1	0.43	0.034	0.014	0.10	0.05	—	0.02	残部	0.20	0.06	0.73	0.25
	33	42.9	0.42	0.014	0.007	0.19	0.99	—	0.02	残部	0.34	0.12	1.29	0.44
	34	44.0	0.43	0.015	0.018	0.14	—	0.01	0.02	残部	0.25	0.09	0.94	0.32
	35	43.7	0.41	0.027	0.018	0.09	—	0.09	0.02	残部	0.27	0.10	1.02	0.35

C #は、不可避不純物として含まれるC量を示す。

表 6

Ni基 合金 板	成分組成(質量%)									1000ppmH ₂ SO ₄ 溶液による 金属イオン 溶出量 (ppm/cm ²)	500ppmH ₂ SO ₄ 溶液による 金属イオン 溶出量 (ppm/cm ²)	50ppmHF 溶液 による 金属イオン 溶出量 (ppm/cm ²)			
	Cr	Mo	Mg	N	Mn	Fe	Si	C#	Niおよび 不 可避 不 純物						
実 施 例	36	43.1	0.42	0.036	0.027	0.14	—	—	0.03	残部	0.32	0.12	1.22	0.42	
	37	46.3	0.34	0.026	0.010	0.26	—	—	0.02	残部	0.16	0.06	0.60	0.20	
	38	44.1	0.42	0.008	0.016	0.22	0.18	0.04	0.02	残部	0.24	0.09	0.93	0.31	
	39	46.0	0.42	0.034	0.005	0.21	0.11	0.05	0.02	残部	0.18	0.07	0.64	0.21	
	40	44.6	0.32	0.029	0.022	0.18	0.26	0.03	0.02	残部	0.25	0.08	0.83	0.28	
	41	43.5	0.44	0.005	0.021	0.09	0.13	0.02	0.02	残部	0.29	0.10	1.10	0.38	
	42	44.4	0.43	0.023	0.022	0.31	—	—	0.01	残部	0.22	0.08	0.88	0.29	
	11	42.5*	0.51	0.014	0.031	0.22	—	—	0.02	残部	4.11	1.45	3.04	1.12	
比 較 例	12	50.4*	0.54	0.033	0.034	0.27	—	—	0.02	残部	製作中割れ発生				
	13	44.4	—*	0.026	0.033	0.32	—	—	0.02	残部	3.21	0.55	3.25	0.16	
	14	44.8	2.3*	0.034	0.024	0.25	—	—	0.03	残部	製作中割れ発生				
	15	45.6	0.85	—*	0.013	0.27	—	—	0.02	残部	製作中割れ発生				
	16	45.4	0.61	0.058	0.015	0.20	—	—	0.02	残部	3.33	1.23	3.72	1.23	
					*										
		17	45.3	0.44	0.37	—*	0.07	—	—	0.02	残部	製作中割れ発生			

*印は、本発明の組成例から外れていることを示す。

C#は、不可避不純物として含まれるC量を示す。

表 7

Ni基 合金 板	成分組成 (質貴%)										1000ppmH ₂ SO ₄ 溶液による 金属イオン 溶出量 (ppm/cm ²)	500ppmH ₂ SO ₄ 溶液による 金属イオン 溶出量 (ppm/cm ²)	500ppmHF 溶液による 金属イオン 溶出量 (ppm/cm ²)	50ppmHF 溶液による 金属イオン 溶出量 (ppm/cm ²)									
	比較例	18	44.2	0.68	0.032	0.045 *	0.16	—	0.02	残部	3.26	1.56	3.01	1.05									
															Cr	Mo	Mg	N	Mn	Fe	Si	C#	Ni および 不可避 不純物
従来技術例	3	SUS304										製作中割れ発生											
		19	46.1	0.46	0.035	0.019	0.04*	—	—	0.01	残部	3.42	1.84	3.45	1.88								
																20	44.7	0.59	0.034	0.026	0.55*	—	—
4	4	SUS316L										33.3	10.2	36.8	9.4								

*印は、本発明の組成税調から外れていることを示す。

C#は、不可避不純物として含まれるC量を示す。

表 5～7 に示された結果から、本発明の第五、六の態様による、実施例の Ni 基合金板 22～42 は、従来技術例の合金板 3 および 4 に比べて試験片の単位面積当たりの金属イオンの溶出量が格段に少ないことが分かる。しかし、この発明から外れた比較例の Ni 基合金板 11～20 の試験片は金属イオンの溶出量がやや多かったり板に加工する途中で大半に割れが発生するなどした。

産業上の利用可能性

本発明の Ni 基合金は固体高分子形燃料電池環境でイオン溶出量が著しく小さい特性を有する。よって、本発明の Ni 基合金からなる部材を用いて固体高分子形燃料電池を組立てることにより、固体電解質膜の劣化を抑えることができ、一層長寿命の固体高分子形燃料電池を提供できる。よって産業上優れた効果をもたらすものである。

なお本発明の Ni 基合金は、上述の如く硫酸やフッ酸を含む固体高分子形燃料電池環境下で使用する事が最も有効であるが、これに限定されるものでなく蟻酸を含む固体高分子形燃料電池環境でも金属イオンの溶出量が極めて小さく、それ故、固体高分子形燃料電池のみならず、金属イオンの溶出を嫌う医薬品製造装置部材としても利用できる。

請 求 の 範 囲

1. 質量%で、Cr : 29~42%未満、Ta : 1より大きく3%以下、Mg : 0.001~0.05%、N : 0.001~0.04%、Mn : 0.05~0.5%を含有し、残部がNiおよび不可避不純物からなり、不可避不純物として含まれるC量が0.05%以下である組成を有する、Ni基合金。
2. 質量%で、Cr : 29~42%未満、Ta : 1%より大きく3%以下、Mg : 0.001~0.05%、N : 0.001~0.04%、Mn : 0.05~0.5%を含有し、さらにMo : 0.1~2%を含有し、残部がNiおよび不可避不純物からなり、不可避不純物として含まれるC量が0.05%以下である組成を有する、Ni基合金。
3. 質量%で、Cr : 29~42%未満、Ta : 1より大きく3%以下、Mg : 0.001~0.05%、N : 0.001~0.04%、Mn : 0.05~0.5%を含有し、さらにFe : 0.05~1.0%およびSi : 0.01~0.1%の1種または2種を含有し、残部がNiおよび不可避不純物からなり、不可避不純物として含まれるC量が0.05%以下である組成を有する、Ni基合金。
4. 質量%で、Cr : 29~42%未満、Ta : 1より大きく3%以下、Mg : 0.001~0.05%、N : 0.001~0.04%、Mn : 0.05~0.5%を含有し、さらにMo : 0.1~2%を含有し、さらにFe : 0.05~1.0%およびSi : 0.01~0.1%の1種または2種を含有し、残部がNiおよび不可避不純物からなり、不可避不純物として含まれるC量が0.05%以下である組成を有する、Ni基合金。
5. 請求項1、2、3または4記載のNi基合金からなる、固体高分子形燃料電池用組立て構造部材。

6. 請求項1、2、3または4記載のNi基合金からなる、固体高分子形燃料電池用マニホールド部材。

5 7. 請求項1、2、3または4記載のNi基合金からなる、固体高分子形燃料電池用配管部材。

8. 請求項1、2、3または4記載のNi基合金からなる、固体高分子形燃料電池用締付け具部材。

10 9. 請求項1、2、3または4記載のNi基合金からなる、固体高分子形燃料電池用支持板部材。

10. 請求項1、2、3または4記載のNi基合金からなる、固体高分子形燃料電池用セパレータ部材。

15

11. 質量%で、Cr : 43より大きく50%以下、Mo : 0.1~2%、Mg : 0.001~0.05%、N : 0.001~0.04%、Mn : 0.05~0.5%を含有し、残部がNiおよび不可避不純物からなり、不可避不純物として含まれるC量が0.05%以下である組成を有する、Ni基合金。

20

12. 質量%で、Cr : 43より大きく50%以下、Mo : 0.1~2%、Mg : 0.001~0.05%、N : 0.001~0.04%、Mn : 0.05~0.5%を含有し、さらに、Fe : 0.05~1.0%およびSi : 0.01~0.1%の内の1種または2種を含有し、残部がNiおよび不可避不純物からなり、不可避不純物として含まれるC量が0.05%以下である組成を有する、Ni
25 i基合金。

13. 請求項11または12記載のNi基合金からなる、固体高分子形燃料電池用組立て構造部材。

14. 請求項11または12記載のNi基合金からなる、固体高分子形燃料電池用マニホールド部材。

5 15. 請求項11または12記載のNi基合金からなる、固体高分子形燃料電池用配管部材。

16. 請求項11または12記載のNi基合金からなる、固体高分子形燃料電池用締付け具部材。

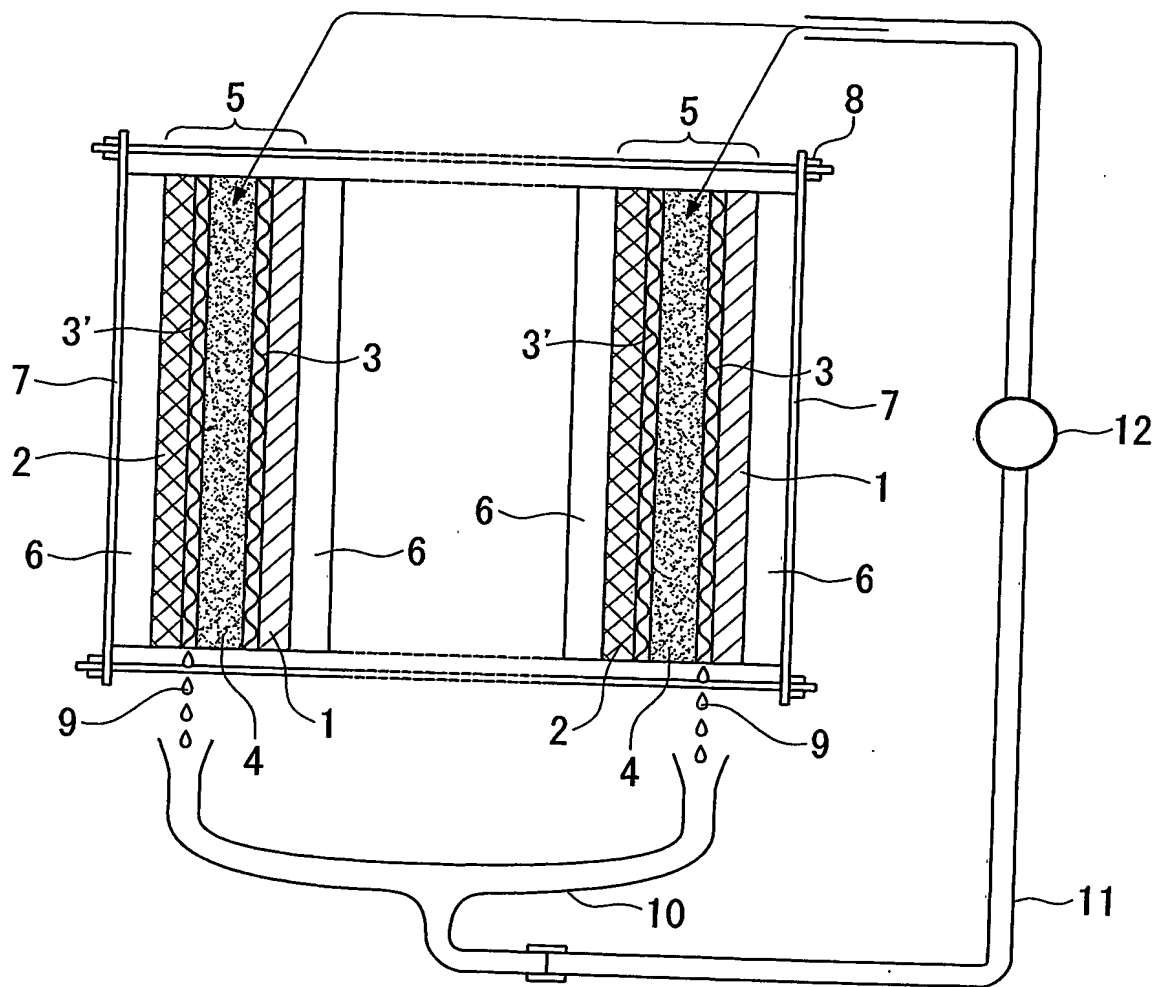
10

17. 請求項11または12記載のNi基合金からなる、固体高分子形燃料電池用支持板部材。

15 18. 請求項11または12記載のNi基合金からなる、固体高分子形燃料電池用セパレータ部材。

1/1

図 1



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/001995

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ C22C19/05, H01M8/10, H01M8/24, H01M8/02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ C22C19/00, H01M8/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2004
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2004	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2004

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
E, X A	WO 03/057933 A1 (Mitsubishi Materials Corp.), 17 July, 2003 (17.07.03), Full text & JP 2003-201531 A & JP 2003-201532 A	1-4, 11-12 5-10, 13-18
A	JP 2001-6694 A (Sumitomo Electric Industries, Ltd.), 12 January, 2001 (12.01.01), Full text (Family: none)	1-18
A	JP 5-311386 A (Kobe Steel, Ltd.), 22 November, 1993 (22.11.93), Full text (Family: none)	1-18

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
26 April, 2004 (26.04.04)

Date of mailing of the international search report
18 May, 2004 (18.05.04)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/001995

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

Where a group of inventions is claimed, the requirement of unity of invention shall be fulfilled only when there is a special technical feature which links the group of inventions so as to form a single general inventive concept. As is described in (extra sheet), the "scope of claims" of the present international application described two inventions classified into claims 1 to 10 and claims 11 to 18.

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☒ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
- ☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/001995

Continuation of Box No. III of continuation of first sheet (2)

(continued from Box No. III)

The number of groups of inventions described in the scope of claims in this international application which are so linked as to form general inventive concept, that is, the number of inventions will be considered in the following.

From the view point of the form of specifying an invention described in the independent claims, the "scope of claims" of the present international application describes two inventions classified into claims 1 to 10 and claims 11 to 18.

The inventions according to claims 1 to 10 have a common matter of "a Ni base alloy which comprises, in mass %, 29 % or more and less than 42 % of Cr and also more than 1% and up to 3 % of Ta and thereby exhibits improved corrosion resistance" which is considered to be a special technical feature. On the other hand, the inventions according to claims 11 to 18 have a common matter of "a Ni base alloy which comprises, in mass %, more than 43 % and less than 50 % of Cr and thereby is suppressed in the elution of a metal ion" which is considered to be a special technical feature. There is no common matter which is considered to be a special technical feature in the meaning of PCT Rule 13.2, the second sentence, between the inventions according to claims 1 to 10 and the inventions according to claims 11 to 18, and therefore, the technical relationship in the meaning of PCT Rule 13 can not be found between those different groups of inventions.

Accordingly, the "scope of claims" of the present international application describes two inventions classified into claims 1 to 10 and claims 11 to 18.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C22C19/05, H01M8/10, H01M8/24, H01M8/02

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C22C19/00, H01M8/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2004年
 日本国登録実用新案公報 1994-2004年
 日本国実用新案登録公報 1996-2004年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
EX	WO 03/057933 A1 (三菱マテリアル株式会社) 2003. 07. 17, 全文	1-4, 11-12
A	& JP 2003-201531 A & JP 2003-201532 A	5-10, 13-18
A	JP 2001-6694 A (住友電気工業株式会社) 2001. 01. 12, 全文 (ファミリーなし)	1-18
A	JP 5-311386 A (株式会社神戸製鋼所) 1993. 11. 22, 全文 (ファミリーなし)	1-18

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

26. 04. 2004

国際調査報告の発送日

18. 5. 2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

河野 一夫

4K

9833

電話番号 03-3581-1101 内線 3435

第II欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項(PCT17条(2)(a))の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。
つまり、
2. ☐ 請求の範囲 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第III欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるところの国際調査機関は認めた。

(特別ページ)に記載したように、請求の範囲に記載されている一群の発明が単一性の要件を満たすには、その一群の発明を単一の一般的発明概念を形成するように連関させるための特別な技術的特徴の存在が必要であるところ、この国際出願の請求の範囲には、1~10と11~18とに区分される、2個の発明が記載されていると認める。

1. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☒ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。

(第Ⅱ欄のつづき)

この国際出願の請求の範囲に記載されている、一般的発明概念を形成するように連関している発明の群の数、すなわち、発明の数につき検討する。

独立請求の範囲に記載されている発明の特定の態様からすると、この国際出願の請求の範囲には、1～10と11～18とに区分される2個の発明が記載されている。

しかし、請求の範囲1～10に係る発明は「質量%でCr 29%以上42%未満含有するとともにTaを1%超3%まで含有せしめて耐食性を向上したNi基合金」という事項が特別な技術的特徴と考えられる共通の事項である一方で、請求の範囲11～18に係る発明は「質量%でCr 43%超50%未満含有せしめて金属イオン溶出を抑制したNi基合金」という事項が特別な技術的特徴と考えられる共通の事項であり、請求の範囲1～10に係る発明と請求の範囲11～18に係る発明との間には、PCT規則13.2の第2文の意味において特別な技術的特徴と考えられる共通の事項は存在しないので、それらの相違する発明の間にPCT規則13の意味における技術的な関連を見いだすことはできない。

そうすると、この国際出願の請求の範囲には、1～10と11～18とに区分される2個の発明が記載されていると認める。